

⑤

Int. Cl. 2:

C 07 D 487/04

D 06 L 3/12

⑯ BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



Behördenelgentum

DT 25 54 027 A1

⑪

Offenlegungsschrift 25 54 027

⑫

Aktenzeichen:

P 25 54 027.6

⑬

Anmeldetag:

2. 12. 75

⑭

Offenlegungstag:

10. 6. 76

⑳

Unionspriorität:

① ② ③

6. 12. 74 Schweiz 16251-74

⑤④

Bezeichnung:

Neue Triazolverbindungen

→ Fluoresz. (gel. o. feinverb.) S. 12
keine exp. Fluoresz. doch, nur
Farbe der Krist.

⑦①

Anmelder:

CIBA-GEIGY AG, Basel (Schweiz)

⑦④

Vertreter:

Redies, F., Dr.-Ing. Dr.jur.; Redies, B., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Türk, D., Dr.;
Gille, Ch., Dipl.-Ing.; Pat.-Anwälte, 4000 Düsseldorf

⑦②

Erfinder:

Fletcher, Ian John, Dr., Magden; Kabas, Guglielmo, Dr., Aesch (Schweiz)

DT 25 54 027 A1

This Page Blank (copy)

CIBA-GEIGY AG, Basel, Schweiz

CIBA-GEIGY

Case 1-9678/-

2554027

Deutschland

Neue Triazolverbindungen

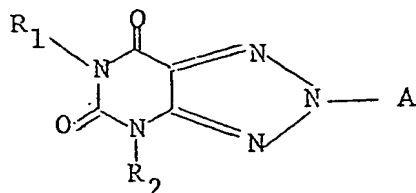
=====

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Triazolderivate, Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung als optische Aufheller für hochmolekulare organische Materialien.

Diese neuen Triazolverbindungen entsprechen der Formel

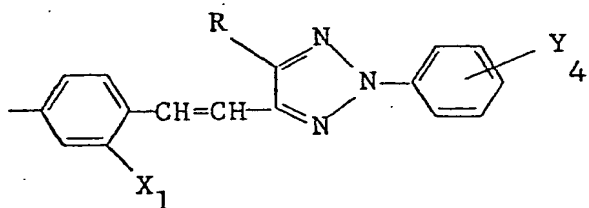
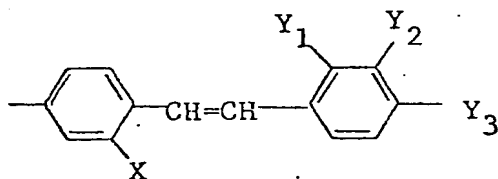
609824/1037

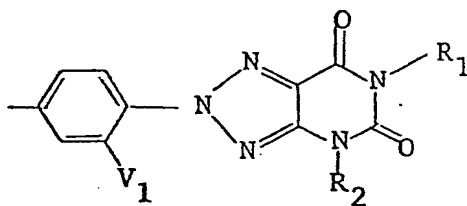
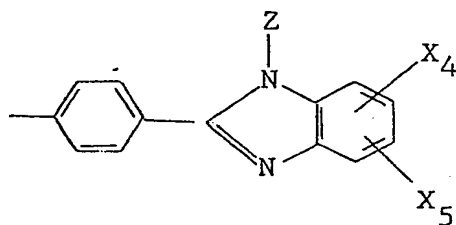
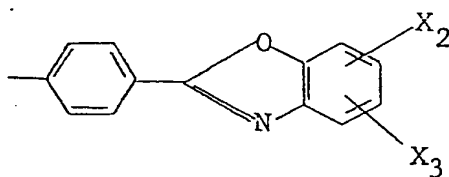
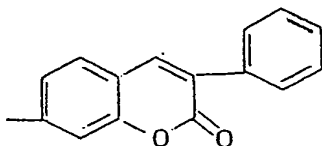
(1)



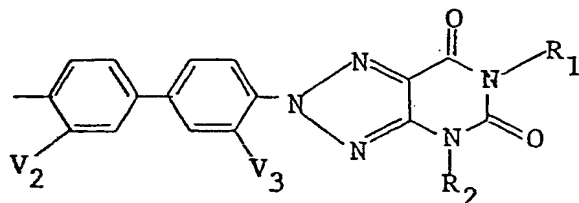
worin

- R_1 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,
 R_2 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstituiertes oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl und
A einen Rest der Formel





oder



darstellen, wobei

- X Wasserstoff, Cyano, Sulfo oder Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y_1 Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y_2 Wasserstoff, Chlor, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder zusammen mit Y_3 Methylendioxy,
- Y_3 Wasserstoff, Chlor, Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Carbalkoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen oder zusammen mit Y_2 Methylendioxy,
- X_1 Wasserstoff, Cyano, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Sulfo, unsubstituiertes oder durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen mono- oder disubstituiertes Sulfamoyl oder Morpholinosulfonyl,
- R Wasserstoff, Methyl oder Phenyl,
- Y_4 Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder in m-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- X_2 Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder jeweils in 5- oder 6-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Carbalkoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen,

- X₃ Wasserstoff oder Methyl,
X₄ Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 Chlor oder in 5- oder 6-Stellung befindliches Alkyl-
 sulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
X₅ Wasserstoff oder Methyl,
Z Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 Phenyl oder Benzyl,
V₁ Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlen-
 stoffatomen und
V₂ und V₃ unabhängig voneinander Wasserstoff oder Sulfo
bedeuten.

Unter "Sulfo" ist jeweils der Rest $-SO_3M$ zu verstehen, worin M für Wasserstoff oder ein salzbildendes Kation steht. Als salzbildende Kationen kommen im allgemeinen diejenigen von Erdalkalimetallen, z.B. des Calciums, Bariums der Magnesiums sowie insbesondere von Alkalimetallen, z.B. des Natriums oder Kaliums, aber auch gegebenenfalls durch Alkyl oder Hydroxyalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Ammonium in Frage. Bevorzugt sind in der Bedeutung von M Wasserstoff, Kalium und Natrium.

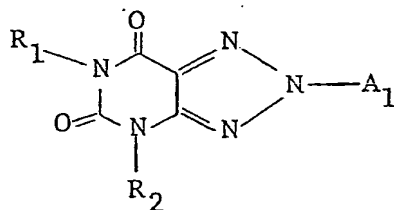
Von besonderem praktischem Interesse sind jeweils solche Verbindungen, bei denen R₁ und R₂ identisch sind; vorzugsweise steht dabei R₁ bzw. R₂ für Alkyl mit 1 bis 6, insbesondere 1 bis 4 Kohlenstoffatomen.

Innnerhalb des Rahmens der Formel (1) verdienen

folgende Verbindungstypen besondere Beachtung:

A. Verbindungen der Formel

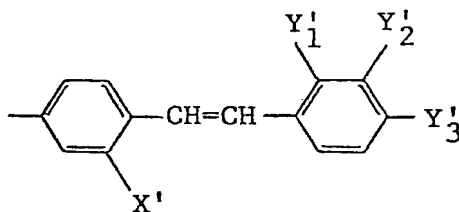
(2)



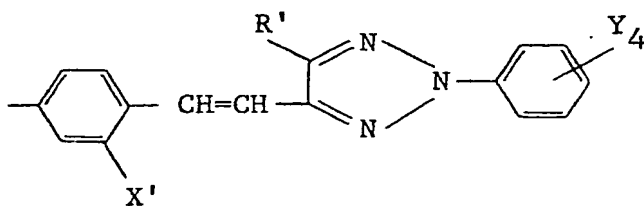
worin

R_1 und R_2 die vorstehend angegebene Bedeutung haben und

A_1 einen Rest der Formel



oder



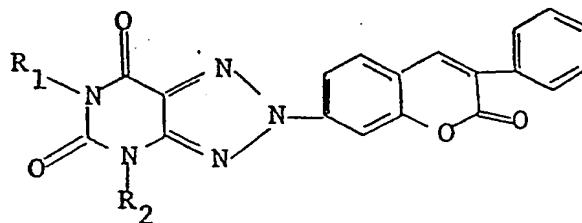
bedeuten, wobei

- X' Wasserstoff, Cyano, Sulfo oder Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y₁' Wasserstoff oder Chlor,
- Y₂' Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y₃' Wasserstoff, Chlor, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl oder Carbalkoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen,
- R' Wasserstoff oder Methyl und
- Y₄ Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Sulfo, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder in m-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen

darstellen.

B. Verbindungen der Formel

(3)

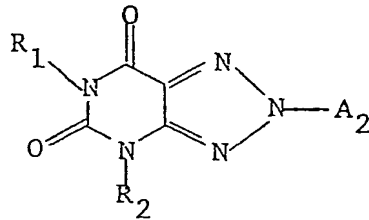


worin

R₁ und R₂ die vorstehend angegebene Bedeutung haben.

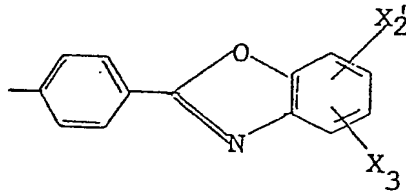
C. Verbindungen der Formel

(4)

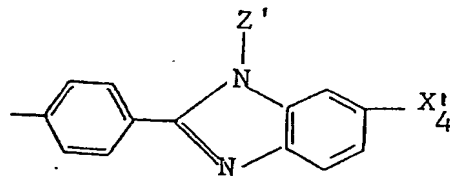


worin

R_1 und R_2 die vorstehend angegebene Bedeutung haben und
 A_2 einen Rest der Formel



oder

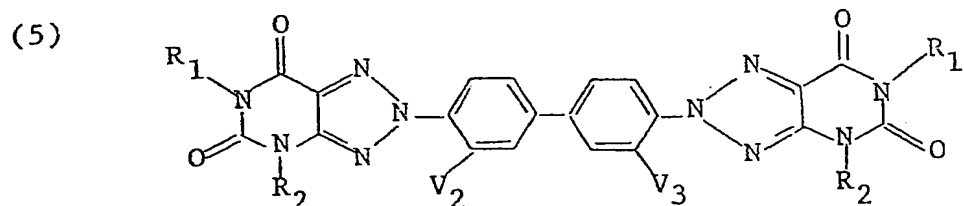


bedeuten, wobei

X_2' Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Carbal-
 koxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen oder Alkylsulfonyl

mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 X_3 Wasserstoff oder Methyl,
 Z' Wasserstoff oder Methyl und
 X_4^1 Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder
 Chlor
 darstellen.

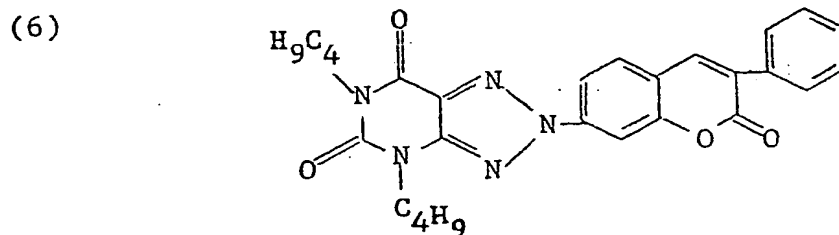
D. Verbindungen der Formel



worin

R_1 und R_2 die vorstehend angegebene Bedeutung haben und
 V_2 und V_3 unabhängig voneinander Wasserstoff oder Sulfo
 darstellen.

Von den Verbindungen der Formel (3) ist diejenige
 der Formel

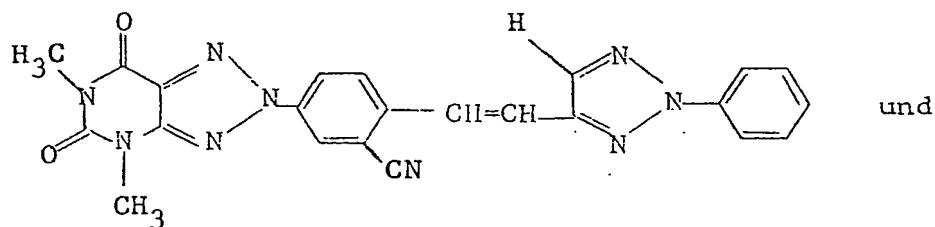


hervorzuheben.

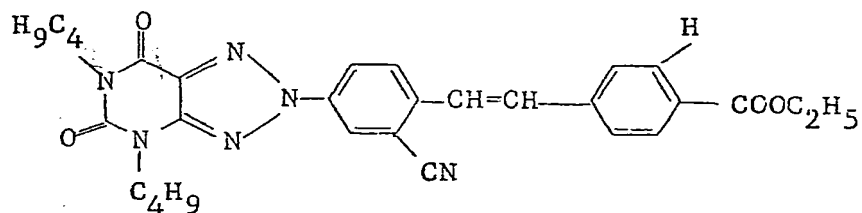
609824/1037

Verbindungen von besonderem praktischem Interesse
im Rahmen der Formel (2) sind solche der Formeln

(7)



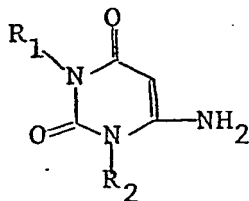
(8)



Die Verbindungen der Formeln (1) bis (8) können in
Analogie zu an sich bekannter Verfahren hergestellt werden.

Beispielsweise koppelt man ein Amin der Formel

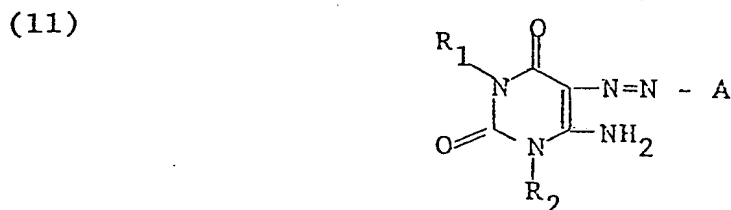
(9)



mit einem Diazoniumsalz der Formel



und überführt dann die erhaltene o-Aminoverbindung der Formel



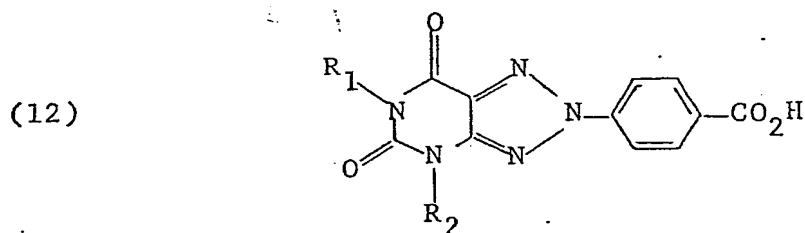
durch oxydative Ringschluss in ein Triazol der Formel (1) (vgl. J. Jezo und Z. Vozicky, Chem. Zvesti, 6, 357 (1952)).

Der oxydative Ringschluss kann durch Einwirkung der verschiedensten Oxydationsmittel bewirkt werden, dabei ist das Arbeiten in oxydationsbeständigen Lösungsmitteln empfehlenswert. In saurer, beispielsweise essigsaurer Lösung sind Bichromat oder Wasserstoffperoxyd brauchbare Oxydationsmittel, in basischen Lösungsmitteln, wie Pyridin oder Pyridin-Wassergemischen kommt beispielsweise Kaliumferricyanid in Frage. Das allgemein anwendbare und deshalb bevorzugte Verfahren besteht in der Oxydation mit Kupfer - (II)-sulfat in Pyridin-Wasser. Es brauchen dabei nicht stöchiometrische Mengen an Kupfer eingesetzt zu werden, weil das bei der Reaktion entstehende einwertige Kupfer während der Reaktion durch Einblasen von Luft oder Sauerstoff ständig wieder in die zweiwertige Stufe überführt werden kann. Mit Vorteil

lässt sich die Oxydation mit Kupfer-(II)-salzen, wie Kupfer-(II)-sulfat oder Kupfer-(II)-chlorid auch in Methanol oder Methanol/Wasser in Gegenwart von Ammonium- oder Aminsalzen durchführen.

Aus diese Weise können alle der oben beschriebenen Verbindungen hergestellt werden.

Für Verbindungen der Formel (4) kann die Herstellung auch erfolgen, in dem man nach bekannten Methoden eine Carbonsäure der allgemeinen Formel



in ein Benzoxazol- beziehungsweise Benzimidazol-Derivat überführt. Die Herstellung solcher Carbonsäurezwischenprodukte kann auch nach der oben beschriebenen Art erfolgen.

Die vorstehend definierten neuen Verbindungen zeigen in gelöstem oder feinverteiltem Zustande eine mehr oder weniger ausgeprägte Fluoreszenz. Sie können zum optischen Aufhellen der verschiedensten synthetischen, halbsynthetischen oder natürlichen organischen Materialien oder Substanzen, welche solche organischen Materialien enthalten, verwendet werden.

Hierfür seien beispielsweise, ohne dass durch die

nachfolgende Uebersicht irgendeine Beschränkung hierauf ausgedrückt werden soll, die folgenden Gruppen von organischen Materialien, soweit eine optische Aufhellung derselben in Betracht kommt, genannt:

I. Synthetische organische hochmolekulare Materialien:

- a) Polymerisationsprodukte auf Basis mindestens eine polymerisierbare Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindung enthaltender organischer Verbindungen, d.h. deren Homo- oder Copolymerisate sowie deren Nachbehandlungsprodukte wie beispielsweise Vernetzungs-, Pfropfungs- oder Abbauprodukte, Polymerisat-Verschnitte oder durch Modifizierung reaktionsfähiger Gruppen erhaltene Produkte, beispielsweise Polymerisate auf Basis von α,β -ungesättigten Carbonsäuren oder Derivaten solcher Carbonsäuren, insbesondere von Acrylverbindungen (wie z.B. Acrylestern, Acrylsäure, Acrylnitril, Acrylamiden und deren Derivaten oder deren Methacryl-Analoga), von Olefin-Kohlenwasserstoffen (wie z.B. Aethylen, Propylen, Styrole oder Diene, ferner sogenannte ABS-Polymerisate), Polymerisate auf Basis von Vinyl- und Vinyliden-Verbindungen (wie z.B. Vinylchlorid Vinylalkohol, Vinylidenchlorid),
- b) Polymerisationsprodukte die durch Ringöffnung erhältlich sind, z.B. Polyamide vom Polycaprolactam-Typ, ferner Polymere, die sowohl über Polyaddition als auch Polykondensation erhältlich sind, wie Polyäther oder Polyacetale,

- c) Polykondensationsprodukte oder Vorkondensate auf Basis bi- oder polyfunktioneller Verbindungen mit kondensationsfähigen Gruppen, deren Homo- und Mischkondensationsprodukte sowie Produkte der Nachbehandlung, wie beispielsweise Polyester, insbesondere gesättigte (z.B. Äthylenglykolterephthalsäure-Polyester) oder ungesättigte (z.B. Maleinsäure-Dialkohol-Polykondensate sowie deren Vernetzungsprodukte mit anpolymerisierbaren Vinylmonomeren), unverzweigte sowie verzweigte (auch auf Basis höherwertiger Alkohole, wie z.B. Alkydharze) Polyester, Polyamide (z.B. Hexamethyldiamin-adipat), Maleinatharze, Melaminharze, deren Vorkondensate und Analoga, Polycarbonate, Silikone,
- d) Polyadditionsprodukte wie Polyurethane (vernetzt und unvernetzt), Epoxidharze.

II. Halbsynthetische organische Materialien, z.B. Celluloseester verschiedener Veresterungsgrade (sogenanntes 2 1/2-Acetat, Triacetat) oder Celluloseäther, regenerierte Cellulose (Viskose, Kupferammoniak-Cellulose) oder deren Nachbehandlungsprodukte, Casein-Kunststoffe.

III. Natürliche organische Materialien animalischen oder vegetabilischen Ursprungs, beispielsweise auf Basis von Cellulose oder Proteinen wie Baumwolle, Wolle, Leinen, Seide, natürliche Lackharze, Stärke, Casein.

Die optisch aufzuhellenden organischen Materialien können den verschiedenartigsten Verarbeitungszuständen (Rohstoffe, Halbfabrikate oder Fertigfabrikate) angehören. Sie können andererseits in Form der verschiedenartigsten geformten Gebilde vorliegen, d.h. beispielsweise als vorwiegend dreidimensional ausgedehnte Körper wie Platten, Profile, Spritzgussformlinge, verschiedenartige Werkstücke, Schnitzel, Granulate oder Schaumstoffe, ferner als vorwiegend zweidimensional ausgebildete Körper wie Filme, Folien, Lacke, Ueberzüge, Imprägnierungen und Beschichtungen oder als vorwiegend eindimensional ausgebildete Körper wie Fäden, Fasern, Flocken, Drähte. Die besagten Materialien können andererseits auch in umgeformten Zuständen in den verschiedenartigsten homogenen oder inhomogenen Verteilungsformen, wie z.B. als Pulver, Lösungen, Emulsionen, Dispersionen, Latices, Pasten oder Wachse vorliegen.

Fasermaterialien können beispielsweise als endlose Fäden (verstreckt oder unverstreckt), Stapelfasern, Flocken, Strangware, textile Fäden, Garne, Zwirne, Faservliese, Filze, Watten, Beflockungs-Gebilde oder als textile Gewebe oder textile Verbundstoffe, Gewirke sowie als Papiere, Pappen oder Papiermassen vorliegen.

Den erfindungsgemäss anzuwendenden Verbindungen kommt u.a. Bedeutung für die Behandlung von textilen organischen Materialien, insbesondere textilen Geweben, zu.

Sofern Fasern, welche als Stapelfasern oder Endlosfäden, in Form von Strangen, Geweben, Gewirken, Vliesen, beflockten Substraten oder Verbundstoffen vorliegen können, erfindungsgemäss optisch aufzuhellen sind, geschieht dies mit Vorteil in wässrigem Medium, worin die betreffenden Verbindungen in feinverteilter Form (Suspensionen, sogenannten Mikrodispersionen, gegebenenfalls Lösungen) vorliegen. Gegebenenfalls können bei der Behandlung Dispergier-, Stabilisier-, Netz- und weitere Hilfsmittel zugesetzt werden.

In Abhängigkeit vom verwendeten Aufheller-Verbindungstyp kann es sich als vorteilhaft erweisen, in neutralem oder alkalischem oder saurem Bade zu arbeiten. Die Behandlung wird üblicherweise bei Temperaturen von etwa 20 bis 140°C, beispielsweise bei Siedetemperatur des Bades oder in deren Nähe (etwa 90°C), durchgeführt. Für die erfindungsgemässe Veredlung textiler Substrate kommen auch Lösungen oder Emulsionen in organischen Lösungsmitteln in Betracht, wie dies in der Färbereipraxis in der sogenannten Lösungsmittelfärberei (Foulard-Thermofixierapplikation, Ausziehfarbeverfahren in Färbemaschinen) praktiziert wird.

Die neuen optischen Aufhellmittel gemäss vorliegender Erfindung können ferner den Materialien vor oder während deren Vorformung zugesetzt bzw. einverleibt werden.

So kann man sie beispielsweise bei der Herstellung von Filmen, Folien (z.B. Einwalzen in Polyvinylchlorid in der Hitze) oder Formkörpern der Pressmasse oder Spritzgussmasse beifügen.

Sofern die Formgebung voll- oder halbsynthetischer organischer Materialien durch Spinnverfahren bzw. über Spinnmassen erfolgt, können die optischen Aufheller nach folgenden Verfahren appliziert werden:

- Zugabe zu den Ausgangssubstanzen (z.B. Monomeren) oder Zwischenprodukten (z.B. Vorkondensaten, Praepolymeren), d.h. vor oder während der Polymerisation, Polykondensation oder Polyaddition,
- Aufpudern auf Polymerisatschnitzel oder Granulate für Spinnmassen,
- Badfärbung von Polymerisatschnitzeln oder Granulaten für Spinnmassen,
- Dosierte Zugabe zu Spinnschmelzen oder Spinnlösungen,
- Applikation auf Spinnkabel vor dem Verstrecken.

Die neuen optischen Aufhellmittel gemäss vorliegender Erfindung können beispielsweise auch in folgenden Anwendungsformen eingesetzt werden:

- a) Mischungen mit Farbstoffen (Nuancierung) oder Pigmenten (Farb- oder insbesondere z.B. Weisspigmenten) oder als Zusatz zu Färbebädern, Druck- Aetz- oder Reservepasten. Ferner auch zur Nachbehandlung von Färbungen, Drucken oder Aetzdrucken,

- b) in Mischungen mit sogenannten "Carriern", Netzmitteln, Weichmachern, Quellmitteln, Antioxydantien, Lichtschutzmitteln, Hitzestabilisatoren, chemischen Weichmitteln (Chlorit-Bleiche, Bleichbäder-Zusätze),
- c) in Mischung mit Vernetzern, Appreturmitteln (z.B. Stärke oder synthetischen Appreturen) sowie in Kombination mit den verschiedensten Textilveredlungsverfahren, insbesondere Kunsthärzausrüstungen (z.B. Knitterfest-Ausrüstungen wie "wash-and-wear", "permanent-press", "no-iron"), ferner Flammfest-, Weichgriff-, Schmutzablässe ("anti-soiling")- oder Antistatisch-Ausrüstungen oder antimikrobiellen Ausrüstungen,
- d) Einarbeiten der optischen Aufhellmittel in polymere Trägermaterialien (Polymerisations-, Polykondensations- oder Polyadditionsprodukte) in gelöster oder dispergierter Form für Anwendung z.B. in Beschichtungs-, Imprägnier- oder Bindemitteln (Lösungen, Dispersionen, Emulsionen) für Textilien, Vliese, Papier, Leder,
- e) als Zusätze zu sogenannten "master batches",
- f) als Zusätze zu den verschiedensten industriellen Produkten, um dieselben marktfähiger zu machen (z.B. Aspektverbesserung von Seifen, Waschmitteln, Pigmenten,
- g) im Kombination mit anderen, optischen aufhellend wirkenden Substanzen,
- h) in Spinnbadpräparationen, d.h. als Zusätze zu Spinnbädern, wie sie zur Gleitfähigkeitsverbesserung für

die Weiterverarbeitung von Synthese-Fasern verwendet werden, oder aus einem speziellen Bad vor der Verstreckung der Faser,

i) als Scintillatoren, für verschiedene Zwecke photographischer Art, wie z.B. für elektrophotographische Reproduktion oder Supersensibilisierung, zur optischen Aufhellung photograph Schichten, ggf. in Kombination mit Weisspigmenten wie z.B. TiO_2 .

Je nach Substitution eignen sich die neuen Verbindungen ausserdem als Laser-Farbstoffe für Emission im Bereiche des kurzwelligen sichtbaren Lichtes.

Wird das Aufhellverfahren mit Textil-Behandlungs- oder Veredlungsmethoden kombiniert, so kann die kombinierte Behandlung in vielen Fällen vorteilhafterweise mit Hilfe entsprechender beständiger Präparate erfolgen, welche die optisch aufhellenden Verbindungen in solcher Konzentration enthalten, dass der gewünschte Aufhelleffekt erreicht wird.

In gewissen Fällen werden die Aufheller durch eine Nachbehandlung zu vollen Wirkung gebracht. Diese kann beispielsweise eine chemische (z.B. Säure-Behandlung), eine thermische (z.B. Hitze) oder eine kombinierte chemisch/thermische Behandlung darstellen. So verfährt man beispielsweise bei der optischen Aufhellung einer Reihe von Faser-substraten, z.B. von Polyesterfasern, mit den erfindungsge-

mässen Aufhellern zweckmässig in der Weise, dass man diese Fasern mit den wässerigen Dispersionen (gegebenenfalls auch Lösungen) der Aufhellmittel bei Temperaturen unter 75°C, z.B. bei Raumtemperatur, imprägniert und einer trockenen Wärmebehandlung bei Temperaturen über 100°C unterwirft, wobei es sich im allgemeinen empfiehlt, das Fasermaterial vorher noch bei mässig erhöhter Temperatur, z.B. bei mindestens 60°C bis etwa 130°C zu trocknen. Die Wärmebehandlung in trockenem Zustand erfolgt dann vorteilhaft bei Temperaturen zwischen 120 und 225°C, beispielsweise durch Erwärmen in einer Trockenkammer, durch Bügeln im angegebenen Temperaturintervall oder auch durch Behandeln mit trockenem, überhitztem Wasserdampf. Die Trocknung und trockene Wärmebehandlung können auch unmittelbar nacheinander ausgeführt oder in einen einzigen Arbeitsgang zusammengelegt werden.

Die Menge der erfindungsgemäss zu verwendenden neuen optischen Aufheller, bezogen auf das optisch aufzuhellende Material, kann in weiten Grenzen schwanken. Schon mit sehr geringen Mengen, in gewissen Fällen z.B. solchen von 0,0005 Gewichtsprozent, kann ein deutlicher und haltbarer Effekt erzielt werden. Es können aber auch Mengen bis zu etwa 0,8 Gewichtsprozent und gegebenenfalls bis zu etwa 2 Gewichtsprozent zur Anwendung gelangen. Für die meisten praktischen Belange sind vorzugsweise Mengen zwischen 0,005 und 0,5 Gewichtsprozent von Interesse.

Die neuen optischen Aufhellmittel eignen sich auch besonders als Zusätze für Waschbäder oder zu Gewerbe- und Haushaltswaschmitteln, wobei sie in verschiedener Weise zugesetzt werden können. Zu Waschbädern werden sie zweckmässig in Form ihrer Lösungen in Wasser oder organischen Lösungsmitteln oder auch in feiner Verteilung als wässrige Dispersionen zugegeben. Zu Haushalt- oder gewerblichen Waschmitteln werden sie vorteilhaft in irgend einer Phase des Herstellungsprozesses der Waschmittel, z.B. der sogenannten "slurry" vor dem Zerstäuben des Waschpulver oder bei der Vorbereitung flüssiger Waschmittelkombinationen, zugesetzt. Die Zugabe kann sowohl in Form einer Lösung oder Dispersion in Wasser oder anderen Lösungsmitteln als auch ohne Hilfsmittel als trockenes Aufhellpulver erfolgen. Man kann die Aufhellmittel beispielsweise mit den waschaktiven Substanzen vermischen, verkneten oder vermahlen und so dem fertigen Waschpulver zumischen. Sie können jedoch auch gelöst oder vordispersiert auf das fertige Waschmittel aufgesprüht werden.

Als Waschmittel kommen die bekannten Mischungen von Waschaktivsubstanzen wie beispielsweise Seife in Form von Schnitzeln und Pulver, Synthetika, lösliche Salze von Sulfonsäurehalbestern höherer Fettalkohole, höher und/oder mehrfach alkylsubstituierten Arylsulfonsäuren, Sulfocarbonsäureester mittlerer bis höherer Alkohole, Fettsäureacyl-

aminoalkyl- oder -aminoarylglycerinsulfonate, Phosphorsäure-ester von Fettalkoholen usw, in Frage. Als Aufbaustoffe, sogenannte "Builders", kommen z.B. Alkalipoly- und-polymetaphosphate, Alkalipyrophosphate, Alkalisalze der Carboxymethylcellulose und andere "soilrepositionsinhibitoren", ferner Alkalisilikate, Alkalicarbonate, Alkaliborate, Alkaliperborate, Nitrilotriessigsäure, Aethylendiaminotetraessigsäure, Schaumstabilisatoren wie Alkanolamide höherer Fettsäuren, in Betracht. Ferner können in den Waschmitteln beispielsweise enthalten sein:

antistatische Mittel, rückfettende Hautschutzmittel wie Lanolin, Enzyme, Antimikrobika, Parfüme und Farbstoffe.

Die neuen optischen Aufheller haben den besonderen Vorteil, dass sie auch bei Gegenwart von Aktivchlorspendern, wie z.B. Hypochlorit, wirksam sind und ohne wesentliche Einbusse der Effekte in Waschbädern mit nichtionogenen Waschmitteln, z.B. Alkylphenolpolyglykoläthern, verwendet werden können.

Die erfindungsgemässen Verbindungen werden in Mengen von 0,005 - 1% oder mehr, bezogen auf das Gewicht des Flüssigen oder pulverförmigen, fertigen Waschmittels, zugesetzt. Waschflotten, die die angegebenen Mengen der beanspruchten optischen Aufheller enthalten, verleihen beim Waschen von Textilien aus Cellulosefasern, Polyamidfasern, hochveredel-

ten Cellulosefasern, Polyesterfasern, Wolle etc. einen brillanten Aspekt am Tageslicht.

Die Waschbehandlung wird beispielsweise wie folgt durchgeführt:

Die angegebenen Textilien werden wähen 1 bis 30 Minuten bei 20 bis 100°C in einem Waschbad behandelt, das 1 bis 10 g/kg eines aufgebauten, zusammengesetzten Waschmittels und 0,05 bis 1%, bezogen auf das Waschmittelgewicht, der beanspruchten Aufhellmittel enthält. Das Flottenverhältnis kann 1:3 bis 1:50 betragen. Nach dem Waschen wird wie üblich gespült und getrocknet. Das Waschbad kann als Bleichzusatz 0,2 g/l Aktivchlor (z.B. als Hypochlorit) oder 0,1 bis 2 g/l Natriumperborat enthalten.

In den Beispielen sind Teile, soweit nicht anders angegeben, immer Gewichtsteile und Prozente immer Gewichtsprozente. Schmelz- und Siedepunkte sind, sofern nicht anders vermerkt, unkorrigiert.

Beispiel 1

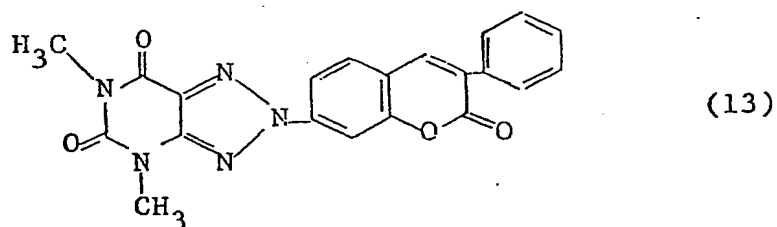
23,7 g 7- Amino-3-phenylcumarin werden zusammen mit
100 ml Wasser
50 ml konzentrierter Salzsäure,
35 g Quarzsand und etwas Octanol über Nacht gerührt
und die hellgelbe Suspension vom Sand befreit.
Die Suspension wird in einem Becherglas unter
Rühren auf 10°C abgekühlt und bei dieser Temperatur
mit
7,25 g Natriumnitrit in
15 ml Wasser gelöst innert 30 Minuten diazotiert.
Nach weiteren 2 Stunden bei 10-15°C ist die
Diazotierung beendet und es entsteht eine hell-
gelbe Suspension.
15,5 g 6-Amino-1,3-dimethyluracil werden in
400 ml Pyridin suspendiert, auf 0°C abgekühlt und bei 0-5°C
innert 30 Minuten mit der Diazoniumsalz-Suspension
versetzt. Es bildet sich sofort eine orange Suspension.
Nach 2 Stunden bei 10-15°C ist die Kupplung beendet
und das Produkt wird abgenutscht, mit Wasser
gewaschen und bei 100°C unter Vakuum getrocknet.
Dieses rohe Produkt wird nun in
350 ml Pyridin suspendiert, auf 60°C erwärmt und bei dieser
Temperatur mit einer Lösung von
62,4 g Kupfersulfat-Pentahydrat in

250 ml Wasser innert 30 Minuten versetzt. Anschliessend wird das Gemisch während 4 Stunden bei 90-95°C gerührt, auf

3 l Wasser gegossen, abgenutscht, mit 5%-iger Salzsäure und mit Wasser gewaschen und bei 100°C unter Vakuum getrocknet.

Rohausbeute: 39,1 g, entsprechen 98% der Theorie.

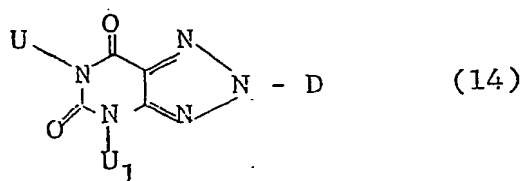
Durch zweimalige Umkristallisation aus o-Dichlorbenzol unter Behandlung mit Bleicherde wird das Produkt in Form gelber Kristalle der Formel (13) erhalten. Die Ausbeute beträgt 57% der Theorie und der Schmelzpunkt liegt bei 313-314°C.

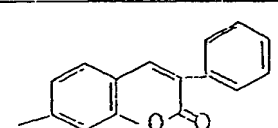
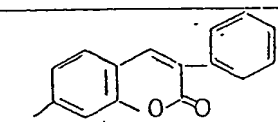
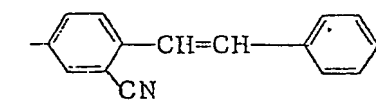
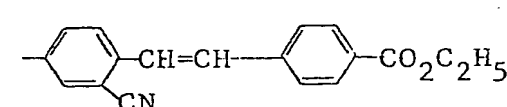
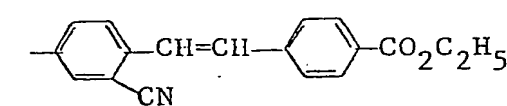
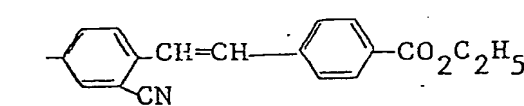
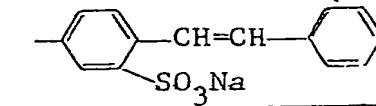
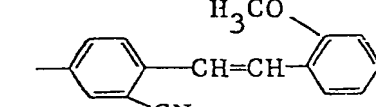
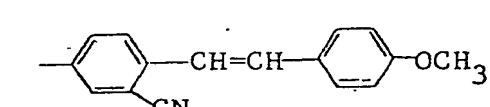


In analoger Weise ausgehend von verschiedenen 6-Amino-1,3disubstituierten Uracilen und Aminen können die in der Tabelle I aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (14) hergestellt werden.

Tabelle 1

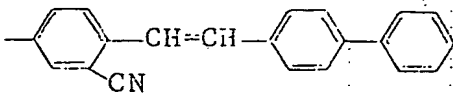
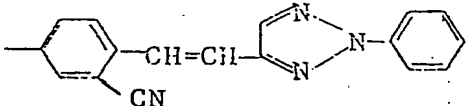
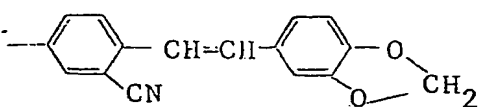
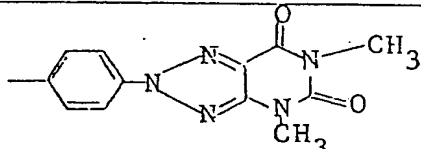
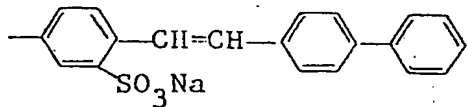
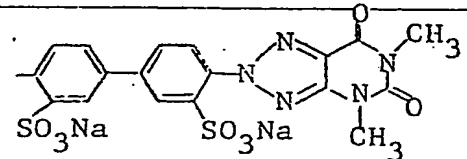
2554027



Formel	U	U ₁	D	Schmelzpunkt unkorr. in °C
(15)	ⁿ C ₄ H ₉	ⁿ C ₄ H ₉		129 - 131
(16)	CH ₃	C ₆ H ₅		329 - 330
(17)	CH ₃	CH ₃		324 - 325
(18)	CH ₃	CH ₃		293 - 294
(19)	CH ₃	C ₆ H ₅		306 - 308
(20)	ⁿ C ₄ H ₉	ⁿ C ₄ H ₉		202 - 203
(21)	CH ₃	CH ₃		>350
(22)	CH ₃	CH ₃		327 - 328
(23)	CH ₃	CH ₃		303 - 304

609824/1037

Fortsetzung Tabelle 1

Formel	U	U ₁		Schmelzpunkt unkorr. in °C
(24)	CH ₃	CH ₃		322 - 323
(25)	CH ₃	CH ₃		309 - 310
(26)	CH ₃	CH ₃		327 - 329
(27)	CH ₃	CH ₃		> 350
(28)	CH ₃	CH ₃		> 350
(29)	CH ₃	CH ₃		> 350

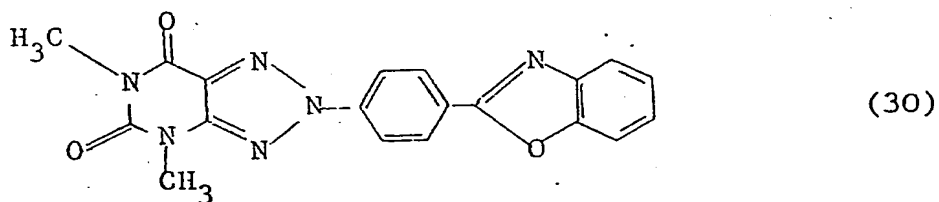
Beispiel 2

30,1 g 2-(p-Carboxyphenyl)-5,7-diketo-4,6-dimethyl-v-triazol-(4,5-d)-pyrimidin werden in
400 ml Thionylchlorid suspendiert, und unter gutem Rühren, innert 1 1/2 Stunden, auf Rückfluss erwärmt. Nach weiteren 2 Stunden ist eine klare dunkelgelbe Lösung entstanden. Es wird auf 20°C abgekühlt und das überschüssige Thionylchlorid abgedampft. Der Rückstand wird mit Toluol versetzt, wobei das Produkt in Form gelber Kristalle ausfällt. Es wird abgenutscht, mit Toluol und Petroläther nachgewaschen und unter Vakuum bei 100°C getrocknet. Man erhält 25,7 g des Carbonsäurechlorids entsprechend 81% der Theorie, welches bei 222-224°C schmilzt.

18,5 g des so hergestelltes Carbonsäurechlorids und
5,45 g o-Aminophenol werden in
200 ml o-Dichlorbenzol 1 Stunde unter Rückfluss gekocht. Nach Abkühlung auf 20°C wird das ausgefallene Produkt abgenutscht, mit Methanol nachgewaschen und nach der Trocknung erhält man 15,6 g, entsprechend 80% der Theorie des rohen Amids welches oberhalb 250°C schmilzt.

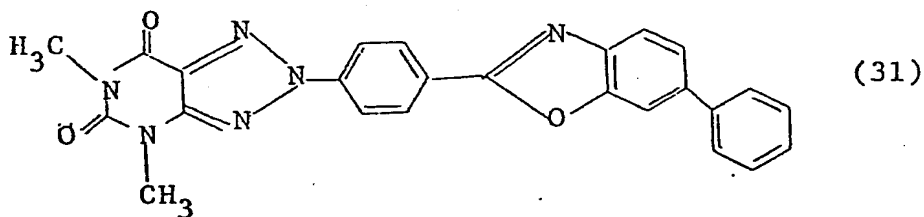
15,6 g des so erhaltenen Carbonsäureamids und
1,5 g Borsäureanhydrid werden zusammen in
250 ml Dibutylphthalat unter Rückfluss während 30 Minuten

erhitzt. Nach Abkühlung auf 20°C wird das ausgefallene Produkt abgenutscht. Nach mehrmaliger Umkristallisation aus o-Dichlorbenzol unter Verwendung von Bleicherde wird das Benzoxazol in Form hellgelbe Kristalle der Formel (30) erhalten.



Die Ausbeute beträgt 19,6 g, entsprechend 67% der Theorie und der Schmelzpunkt liegt bei 302-303°C.

Wird anstelle des o-Aminophenols in der zweiten Stufe 2-Amino-5-phenylphenol benutzt, so erhält man in analoger Weise die Verbindung der Formel (31) die bei 315-316°C schmilzt.

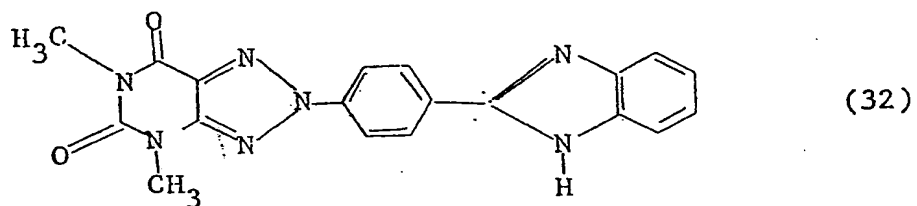


Beispiel 3

5,65 g o-Nitroanilin werden in
80 ml Pyridin gelöst, und zu dieser dunkelroten Lösung
gibt man bei Raumtemperatur inner 30 Minuten
portionsweise
12,5 g des in Beispiel 2 hergestellten Carbonsäurechlorids.
Die Mischung erwärmt sich dabei auf 30°C und das Acy-
lierungsprodukt scheidet sich als gelbes Kristallisat
aus. Nach beendigter Zugabe wird 1 Stunde bei Raum-
temperatur und dann 1 Stunde bei 80-85°C gerührt. Nach
Abkühlung auf 20°C wird das Produkt abgenutscht und
mit Alkohol gewaschen. Nach Trocknung erhält man
13,5 g, entsprechend 82% der Theorie, eines Produkts
das bei 266-267°C schmilzt.
13,5 g des oben hergestellten Produkts werden in
350 ml Methylcellosolve suspendiert und auf 80 - 90°C
erwärmt. Bei dieser Temperatur wird eine Lösung von
34,2 g Zinn-(II)-chlorid-dihydrat in
65 ml konzentrierter Salzsäure innert 25 Minuten zugetropft.
Unter schwacher Erwärmung entsteht eine trübe
fluoreszierende Lösung. Nach dreistündigem Rühren
bei 105-110°C wird die hellgelbe Suspension auf
50°C abgekühlt und auf
1500 ml 10%-iger Natronlauge gegossen. Die ausgefallenen

gelben Kristalle werden abgenutscht und mit Wasser neutral gewaschen.

Nach Umkristallisation aus Dimethylformamid-Wasser, unter Behandlung mit Tierkohle erhält man 3,7 g, entsprechend 31% der Theorie, eines blassgelben Produkts der Formel (32) welches oberhalb von 350°C schmilzt.



Beispiel 4

Zu 100 ml Wasser werden 0,06 g Tinegal NA (= Alkylpolyglycol-äther) gegeben.

Von einem optischen Aufheller der Formel (13) wird eine Lösung hergestellt, indem man 1 g in 1000 ml Dimethylformamid löst. Von dieser Stammlösung gibt man 3 ml zu der oben beschriebenen Lösung. Diese wässrige, den Aufheller enthaltende Lösung, bzw. Dispersion, wird auf 60°C erwärmt, dann gibt man ein 3 g schweres Nylon-Gewebe in die Lösung. Man steigert die Temperatur innert 10-15 Minuten auf 92-95°C und belässt bei dieser Temperatur 30 Minuten. Das Gewebe wird sodann 2 Minuten in fliessendem kaltem Wasser gespült und anschliessend 20 Minuten bei 60°C getrocknet.

Das so behandelte Gewebe zeigt einen deutlichen Aufhellungseffekt. Aehnliche Effekte erhält man auch mit den andern Verbindungen der Beispiele 1 bis 3.

Beispiel 5

Zu 100 ml Wasser werden 0,2 g Irgacarrier TC (= Trichlorbenzol) gegeben.

Vom optischen Aufheller der Formel (13) wird eine Lösung hergestellt, indem man 1 g in 1000 ml Dimethylformamid löst.

Von dieser Stammlösung gibt man 1,5 ml zu der oben beschriebenen Lösung. Diese wässrige, den Aufheller enthaltende Lösung wird auf 60°C erwärmt, dann gibt man ein 3 g schweres Polyester-Gewebe in die Lösung. Man steigert die Temperatur innert 10-15 Minuten auf 95-98°C und belässt bei dieser Temperatur 1 Stunde. Das Gewebe wird sodann 2 Minuten in fliessendem kaltem Wasser gespült und anschliessend 20 Minuten bei 60°C getrocknet.

Das so behandelte Gewebe zeigt einen deutlichen Aufhellungseffekt. Aehnliche Effekte erhält man auch mit den andern Verbindungen der Beispiele 1 bis 3.

Beispiel 6

Vom optischen Aufheller der Formel (13) wird eine Lösung hergestellt, indem man 1 g in 1000 ml DMF löst. Mit dieser Lösung (20°) foulardiert man ein Polyester-Gewebe (Abquetscheffekt 50-60%, Walzendruck 30 kg/cm², Geschwindigkeit 3 m/Min.). Das Gewebe wird 20 Minuten bei 60°C getrocknet. Das trockene Gewebe wird anschliessend 30 Sekunden bei 200°C fixiert. Das so behandelte Gewebe zeigt einen deutlichen Aufhellungseffekt.

Beispiel 7

Im Knetter werden 67 Teile Polyvinylchloridpuder, 33 Teile Dioctylphthalat, 2 Teile Di-n-butyl-diauryl-dioxystannat, 0,3 Teile Natrium-pentaoctyl-tripolyphosphat mit 0,05 Teilen des optischen Aufhellers der Formel (13) auf dem Mischwalzwerk bei 160°C während 15 Minuten gelatinisiert und anschliessend zu Folien ausgezogen. Die derart hergestellte Polyvinylchloridfolie zeigt im Tageslicht eine starke Fluoreszenz und einen brillant weissen Aspekt.

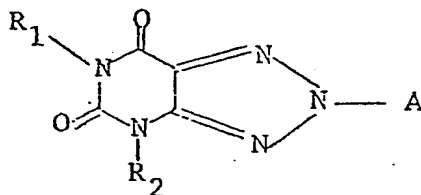
Beispiel 8

1000 Teile Polyestergranulat aus Polyterephthalsäure-
äthylenglykol werden innig mit 0,25 Teilen des optischen
Aufhellers der Formel (13) vermischt und dann unter
Stickstoff aus einem Extruder bei einer Temperatur von
265 bis 285°C in bekannter Weise durch eine Spinndüse
zu Fäden versponnen. Die so erhaltenen Polyesterfäden
zeigen einen brillanten, weissen Aspekt. Aehnliche Effekte
ergeben auch die andern Verbindungen der Beispiele 1 bis 3.

Patentansprüche

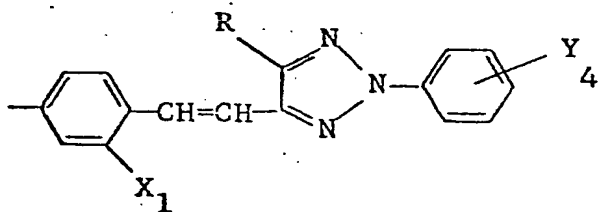
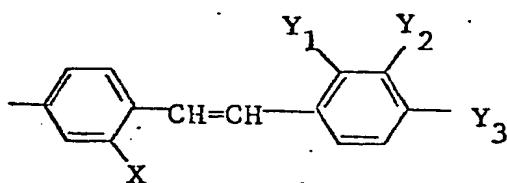
1.

Triazolverbindungen der Formel

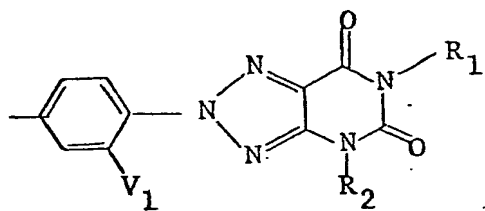
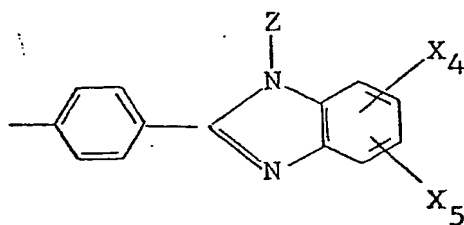
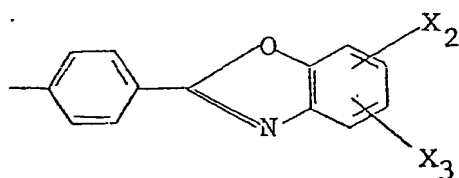
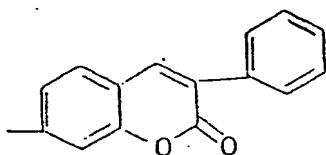


worin

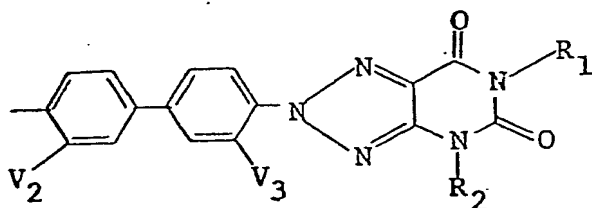
- R_1 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,
 R_2 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstituiertes oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl und
A einen Rest der Formel



609824/1037



oder

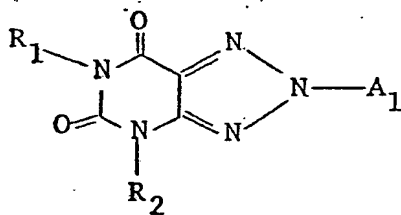


darstellen, wobei

- X Wasserstoff, Cyano, Sulfo oder Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y₁ Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y₂ Wasserstoff, Chlor, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder zusammen mit Y₃ Methylendioxy,
- Y₃ Wasserstoff, Chlor, Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Carballoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen oder zusammen mit Y₂ Methylendioxy,
- X₁ Wasserstoff, Cyano, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Sulfo, unsubstituiertes oder durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen mono- oder disubstituiertes Sulfamoyl oder Morpholinosulfonyl,
- R Wasserstoff, Methyl oder Phenyl,
- Y₄ Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder in m-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- X₂ Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder jeweils in 5- oder 6-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Carballoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen,

- X₃ Wasserstoff oder Methyl,
- X₄ Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
Chlor oder in 5- oder 6-Stellung befindliches Alkyl-
sulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- X₅ Wasserstoff oder Methyl,
- Z Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
Phenyl oder Benzyl,
- V₁ Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlen-
stoffatomen und
- V₂ und V₃ unabhängig voneinander Wasserstoff oder Sulfo
bedeuten.

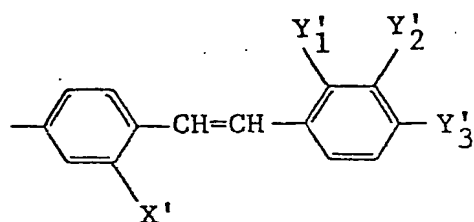
2. Triazolverbindungen gemäss Anspruch 1 entsprechend
der Formel



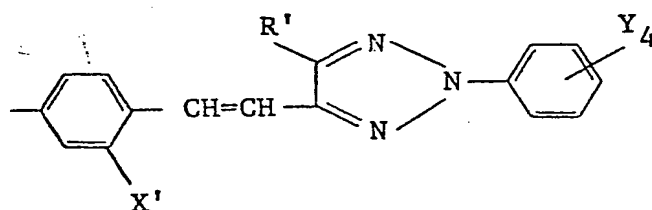
worin

- R₁ Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,
- R₂ Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstitu-
iertes, oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlen-
stoffatomen oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen

A₁ substituiertes Phenyl und
einen Rest der Formel



oder



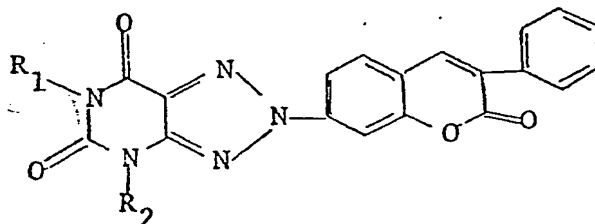
bedeuten, wobei

- X' Wasserstoff, Cyano, Sulfo oder Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y'₁ Wasserstoff oder Chlor,
- Y'₂ Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y'₃ Wasserstoff, Chlor, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl oder Carbalkoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen,
- R' Wasserstoff oder Methyl und
- Y'₄ Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,

Sulfo, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
Chlor oder in m-Stellung befindliches Alkoxy mit 1
bis 4 Kohlenstoffatomen

darstellen.

3. Triazolverbindungen gemäss Anspruch 1 entsprechend
der Formel



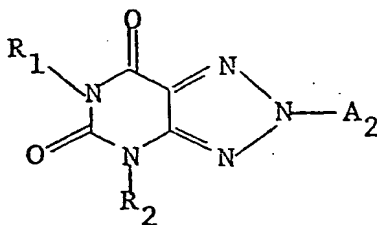
worin

R₁ Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und

R₂ Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstitu-
iertes oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlen-
stoffatomen oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoff-
atomen substituiertes Phenyl

bedeuten.

4. Triazolverbindungen gemäss Anspruch 1 entsprechend
der Formel

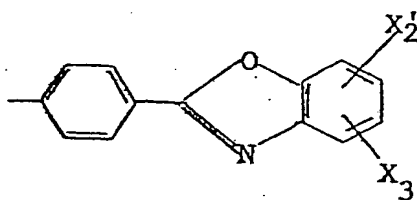


worin

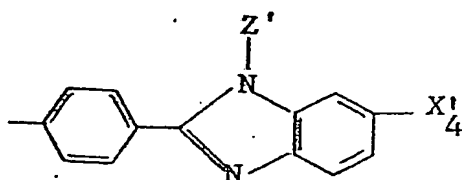
R_1 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,

R_2 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstituiertes oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl und

A_2 einen Rest der Formel



oder

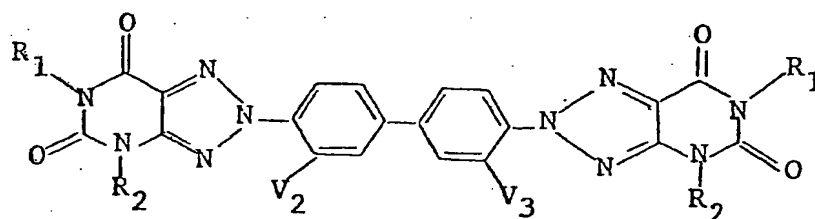


bedeuten, wobei

- X_2' Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Carbal-
koxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen oder Alkylsulfonyl
mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 X_3 Wasserstoff oder Methyl,
 Z' Wasserstoff oder Methyl und
 X_4' Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder
Chlor

bedeuten.

5. Triazolverbindungen gemäss Anspruch 1 entsprechend
der Formel

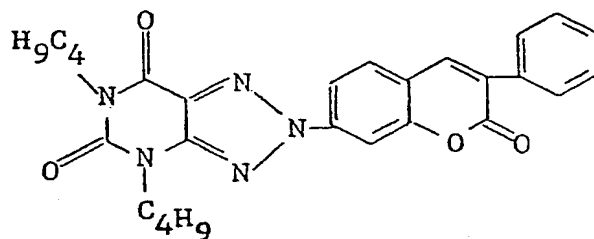


worin

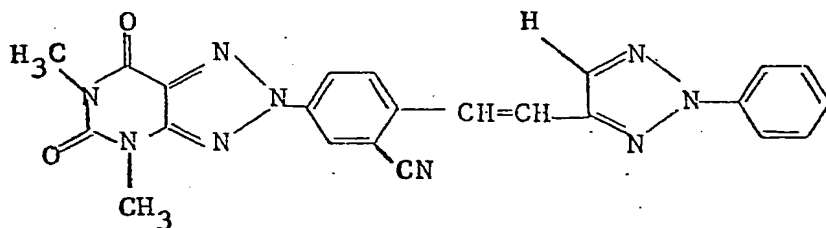
- R_1 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,
 R_2 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstitu-
iertes oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlen-
stoffatomen substituiertes Phenyl und

V_2 und V_3 unabhängig voneinander Wasserstoff oder Sulfo
darstellen.

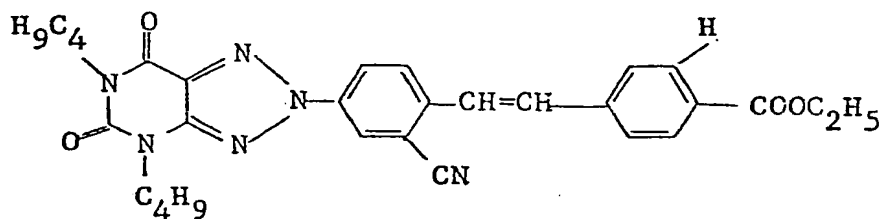
6. Triazolverbindungen gemäss Ansprüchen 1 und 3 entsprechend der Formel



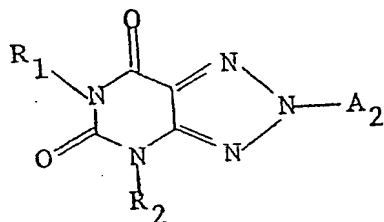
7. Triazolverbindung gemäss Ansprüchen 1 und 2 der Formel



8. Triazolverbindungen gemäss Ansprüchen 1 und 2 entsprechend der Formel

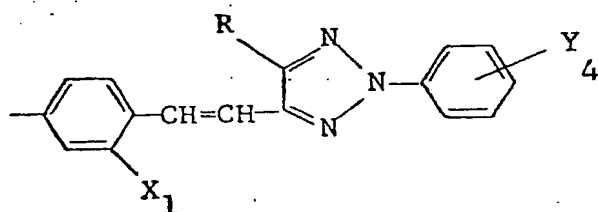
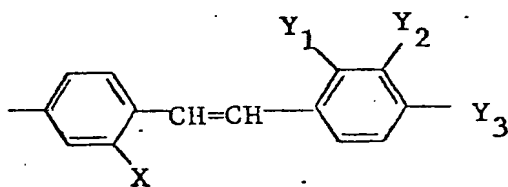


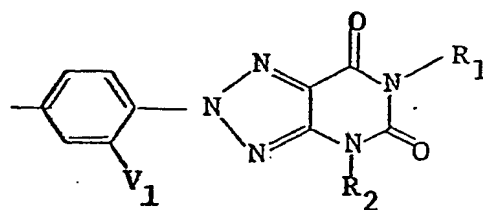
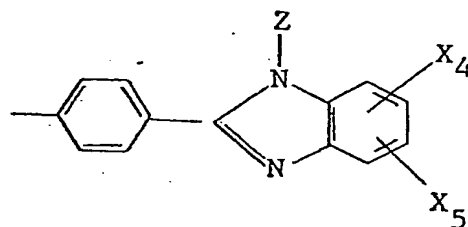
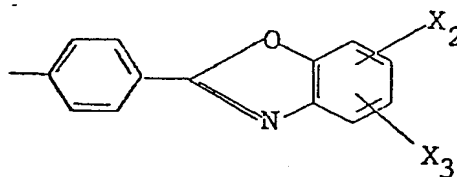
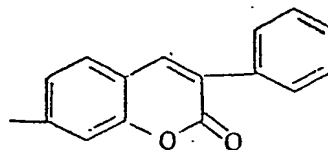
9. Verfahren zur Herstellung von Triazolverbindungen
der Formel



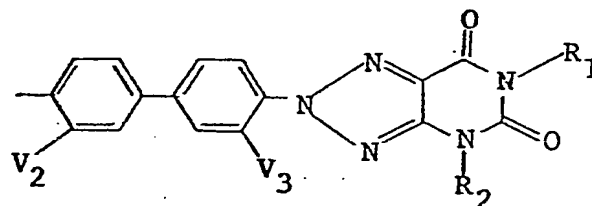
worin

- R_1 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,
 R_2 Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder unsubstitu-
iertes oder durch Halogen, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlen-
stoffatomen oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen
substituiertes Phenyl und
A einen Rest der Formeln





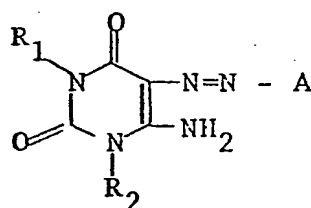
oder



darstellen, wobei

- X Wasserstoff, Cyano, Sulfo oder Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y_1 Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- Y_2 Wasserstoff, Chlor, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder zusammen mit Y_3 Methylendioxy,
- Y_3 Wasserstoff, Chlor, Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Carbalkoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen oder zusammen mit Y_2 Methylendioxy,
- X_1 Wasserstoff, Cyano, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Sulfo, unsubstituiertes oder durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen mono- oder disubstituiertes Sulfamoyl oder Morpholinosulfonyl,
- R Wasserstoff, Methyl oder Phenyl,
- Y_4 Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder in m-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
- X_2 Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Chlor oder jeweils in 5- oder 6-Stellung befindliches Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Carbalkoxy mit 2 bis 5 Kohlenstoffatomen,

- X_3 Wasserstoff oder Methyl,
 X_4 Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 Chlor oder in 5- oder 6-Stellung befindliches Alkyl-
 sulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 X_5 Wasserstoff oder Methyl,
 Z Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,
 Phenyl oder Benzyl,
 V_1 Wasserstoff, Chlor oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlen-
 stoffatomen und
 V_2 und V_3 unabhängig voneinander Wasserstoff oder Sulfo
 bedeuten, dadurch gekennzeichnet, dass man eine o-Aminoverbindung
 der Formel



einer oxydativen Ringschlussreaktion unterwirft.

10. Verwendung der Verbindungen wie in einem der Ansprüche 1 bis 8 definiert, als optische Aufhellmittel für hochmolekulare, organische Materialien, insbesondere Polyamide, Polyester und Polyvinylchlorid.

11. Verfahren zum optischen Aufhellen von hochmolekularen, organischen Materialien, insbesondere Polyamiden, Polyester und Polyvinylchlorid, dadurch gekennzeichnet, dass man Verbindungen wie in einem der Ansprüche 1 bis 8 definiert, diesen Materialien einverleibt oder auf deren Oberfläche aufbringt.

12. Verfahren gemäss Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass man auf die aufzuhellenden Materialien 0,0005 bis 2%, vorzugsweise 0,005 bis 0,5% des Aufhellers - bezogen auf das Gewicht des optisch aufzuhellenden Materials - aufbringt bzw. in dieses einverleibt.

13. Verfahren gemäss den Ansprüchen 11 und 12, dadurch gekennzeichnet, dass die organischen Materialien nach dem Auszieh- oder Foulardtherm-Verfahren behandelt werden.

14. Verfahren gemäss den Ansprüchen 11 und 12, dadurch gekennzeichnet, dass man den Aufheller in Polyesterspinnmassen einverleibt.

15. Hochmolekulare, organische Materialien, insbesondere Polyamide, Polyester und Polyvinylchlorid, enthaltend 0,0005 bis 2%, vorzugsweise 0,005 bis 0,5 Gewichtsprozent mindestens einer Verbindung wie in den Ansprüchen 1 bis 8 definiert.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

This Page Blank (uspto)